

①9 BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

⑫ Off nl gungsschrift
⑪ DE 33 18 098 A 1

⑳ Aktenzeichen: P 33 18 098.9
㉑ Anmeldetag: 18. 5. 83
㉒ Offenlegungstag: 22. 11. 84

⑥1 Int. Cl. 3:
B01J 19/00

B 01 J 8/00
C 01 B 17/80
C 01 C 1/04
C 07 C 31/04
C 07 C 47/04

DE 3318098 A 1

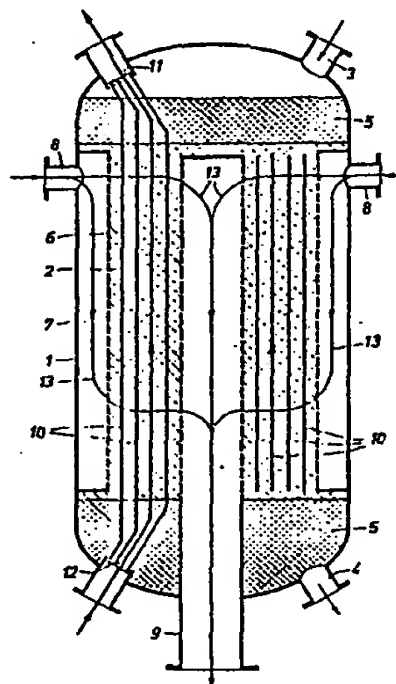
㉑1 Anmelder:
Linde AG, 6200 Wiesbaden, DE

㉑2 Erfinder:
Kruis, Bernhard, Dr., 8023 Pullach, DE; Link, Heinz,
Dipl.-Ing., 8026 Zell, DE; Riquarts, Hans-P.,
Dr.-Ing.habil., 8023 Pullach, DE

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤4 Verfahren und Reaktor zur Durchführung einer endo- oder exothermen Reaktion

Bei einem Verfahren zur Durchführung einer endo- oder exothermen Reaktion wird ein reagierendes Fluid 13 in radialer Richtung durch eine Reaktionszone 2 geführt. In die Reaktionszone sind Rohre 10 eingelagert, die zur Führung eines Heiz- oder Kühlfluides dienen. Die Rohre verlaufen in axialer Vorzugsrichtung durch die Reaktionszone (Fig. 1).



DE 33 18 098 A 1

18.05.83

3318098

1

5

(H 1374; H 1378)

H 83/29
Fa/fl
17.5.83

10

Patentansprüche

- 15 1. Verfahren zur Durchführung einer endo- oder exothermen Reaktion, bei dem ein reagierendes Fluid eine durch ein Heiz- oder Kühlfluid indirekt beheizte oder gekühlte Reaktionszone durchströmt, wobei das Heiz- oder Kühlfluid in axialer Vorzugsrichtung durch die Reaktionszone
- 20 strömt, dadurch gekennzeichnet, daß das reagierende Fluid in radialer Richtung durch die Reaktionszone geführt wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß
- 25 das reagierende Fluid mindestens zwei axial voneinander getrennte Reaktionsteilzonen durchströmt.
3. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß dem reagierenden Fluid nach Durchströmen einer Reaktionsteilzone kaltes unreaktiertes Fluid zugemischt wird.
- 30 4. Verfahren nach Anspruch 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, daß vor Eintritt in die zweite Reaktionsteilzone reagierte Anteile von dem Fluid abgetrennt werden.

35

- 1 5. Reaktor zur Durchführung des Verfahrens nach Anspruch 1
mit einer Reaktionszone und mit in der Reaktionszone
verlaufenden Rohren zur Führung eines Heiz- oder Kühl-
fluids, die in einer Vorzugsrichtung verlaufen, sowie mit
5 Einrichtungen zur Zuführung eines reagierenden und zur
Abführung eines reagierten Fluides, dadurch gekennzeichnet,
daß die Einrichtung zur Zuführung und die Einrichtung
zur Abführung in Ebenen senkrecht zur Vorzugsrichtung
der Rohre (10) angeordnet sind.
- 10 6. Reaktor nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß
eine erste Einrichtung zur Zu- oder Abführung durch
einen Strömungsraum (7) am Umfang der Reaktionszone
gebildet ist, der durch einen mit Durchlaßöffnungen
15 versehenen Mantel (6) von der Reaktionszone abgetrennt
ist.
7. Reaktor nach Anspruch 5 oder 6, dadurch gekennzeichnet,
daß eine zweite Zu- oder Abführung durch einen Strömungs-
raum im Inneren der Reaktionszone gebildet ist, der
20 durch ein mit Durchlaßöffnungen versehenes Zentralrohr
(9) von der umgebenden Reaktionszone abgetrennt ist.
8. Reaktor nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß
25 das Zentralrohr (9) zugleich als Wickelkern für die
Heiz- oder Kühlrohre (10) ausgebildet ist.
9. Reaktor nach einem der Ansprüche 5 bis 8, dadurch gekennzeichnet,
daß in der Reaktionszone mindestens eine senk-
recht zur Achsrichtung verlaufende Trennwand (15,16)
30 angeordnet ist.
10. Reaktor nach einem der Ansprüche 5 bis 9, dadurch gekennzeichnet,
daß die Heiz- oder Kühlflächendichte
35 in der Reaktionszone variiert.

- 1 11. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß die Reaktionszone eine Katalysatorschüttung (2) enthält.

5

10

15

20

25

30

35

1

LINDE AKTIENGESELLSCHAFT

5

(H 1374, H 1378)

H 83/29
Fa/fl
17.5.83

10

Verfahren und Reaktor zur Durchführung
einer endo- oder exothermen Reaktion

15 Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Durchführung einer
endo- oder exothermen Reaktion, bei dem ein
reagierendes Fluid eine durch ein Heiz- oder Kühlfluid in-
direkt beheizte oder gekühlte Reaktionszone durchströmt,
wobei das Heiz- oder Kühlfluid in axialer Vorzugsrichtung
20 durch die Reaktionszone strömt, sowie einen Reaktor zur
Durchführung des Verfahrens.

Ein derartiges Verfahren ist für Synthesereaktionen bereits
bekannt. So zeigt die DE-OS 30 07 202 einen Reaktor zur
25 Durchführung einer Methanolsynthese mit einer zylindrischen
Reaktionszone, die mit einer Schüttung aus Katalysatorteil-
chen gefüllt ist. Das Synthesegas wird in axialer Richtung
durch die Reaktionszone geführt. In der Katalysatorschüt-
tung sind Rohre zur Führung eines Kühlfluids angeordnet,
30 durch welches die bei der Reaktion freiwerdende Wärme ab-
geführt wird. Die Rohre sind um ein Kernrohr gewickelt und
werden von dem Synthesegas im wesentlichen quer angeströmt.
Die Vorzugsströmungsrichtung für das Kühlfluid verläuft
in axialer Richtung, so daß das Kühlfluid parallel oder
35 im Gegenstrom zum Synthesegas strömt. Bei diesem Verfahren

1 wird in der Reaktionszone ein weitgehend isothermes Temperaturprofil erzielt.

Allerdings muß bei diesem Verfahren aufgrund der Strömungsverhältnisse ein großer Druckabfall für das Synthesegas beim Durchgang durch die Reaktionszone in Kauf genommen werden. Neben den energetischen Nachteilen, die dieser Druckverlust mit sich bringt, ist überdies die maximal mögliche Baugröße des Reaktors durch den Druckabfall begrenzt.

10

Der Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren der eingangs genannten Art zu entwickeln, das mit einem geringen Druckabfall des reagierenden Fluides durchführbar ist und das auch die Verarbeitung großer Fluidmengen ermöglicht, wobei im Reaktionsraum der vorteilhafte annähernd isotherme Temperaturverlauf erhalten bleiben soll.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß das reagierende Fluid in radialer Richtung durch die Reaktionszone geführt wird.

Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren erfolgt die Zu- oder Abführung des reagierenden Fluides bzw. des Reaktionsproduktes am Umfang der Reaktionszone, während die Ab- oder Zuführung des Reaktionsproduktes bzw. des reagierenden Fluides in der Achse der Reaktionszone erfolgt. Vorteilhafterweise wird dabei das reagierende Fluid derart geführt, daß sich das "kalte Ende" des Reaktionsprozesses am Umfang befindet, damit der Reaktorausmantel keinen hohen Temperaturen ausgesetzt ist. Dies bedeutet, daß bei einer exothermen Reaktion das reagierende Fluid mit Vorteil radial von außen nach innen geführt wird, während umgekehrt bei einer endothermen Reaktion das reagierende Fluid mit Vorteil radial von innen nach außen geführt wird.

35

1 Die erfindungsgemäße Verfahrensführung ermöglicht eine Bei-
behaltung des weitgehend isothermen Temperaturverlaufs in
der Reaktionszone, wobei nunmehr allerdings der Druckabfall,
den das reagierende Fluid beim Durchgang durch die Reaktions-
5 zone erleidet, minimiert ist und nicht mehr von der Baulänge
des Reaktors abhängt. Auch bei sehr großen Reaktoreinhei-
ten bleibt daher, bei festem Reaktorquerschnitt, ein nied-
riger Druckabfall erhalten. Die erfindungsgemäße Strömungs-
führung ergibt hohe Wärmegangszahlen, verringert die Über-
10 hitzungsgefahr in der Reaktionszone ("Hot Spots") und ver-
kleinert die Temperaturgradienten in der Reaktionszone.

Das erfindungsgemäße Verfahren eignet sich sowohl für die
Durchführung katalytischer Reaktionen, wie beispielsweise
15 Synthesen, als auch für nichtkatalytische Reaktionen, wie
z.B. Spaltreaktionen.

Es erweist sich als vorteilhaft, wenn in weiterer Ausge-
staltung des erfindungsgemäßen Verfahrens das reagierende
20 Fluid mindestens zwei axial voneinander getrennten Reaktions-
teilzonen durchströmt. Hierbei wird, je nach den Verfahrens-
bedingungen, das reagierende Fluid in Parallelführung durch
die Reaktionsteilzonen geführt oder es durchströmt die
Teilzonen zickzackförmig nacheinander.

25 Die Unterteilung der Reaktionszone in mehrere Teilzonen
bietet den Vorteil, daß in der Reaktionszone verschiedene
Temperaturbereiche einstellbar sind. Die Temperatur läßt
sich beispielsweise durch Variation der örtlichen Kühlflä-
30 chendichte variieren. Auf diese Weise wird ein Umsatz-Tem-
peratur-Profil erzielt, das den jeweiligen verfahrenstech-
nischen und/oder wirtschaftlichen Prozeß-Optimalbedingungen
am nächsten kommt.

35 Es kann sich hierbei als zweckmäßig erweisen, wenn dem rea-

1 gierenden Fluid nach Durchströmen einer Reaktionsteilzone
kaltes unreaktiertes Fluid zugemischt wird.

In Weiterbildung des erfindungsgemäßen Verfahrens wird vor-
5 geschlagen, daß vor Eintritt in die zweite Reaktionsteil-
zone reagierete Anteile von dem Fluid abgetrennt werden.

Am Beispiel einer katalysierten Synthese von SO_2 aus einem
Gemisch von SO_3 , O_2 und Inertgasen bedeutet dies, daß in
10 der ersten Reaktionsteilzone gebildetes SO_3 von dem Gas-
strom abgetrennt wird, bevor dieser in die zweite Reaktions-
teilzone geleitet wird.

Die Erfindung betrifft weiterhin einen Reaktor zur Durch-
15 führung des erfindungsgemäßen Verfahrens mit einer Reaktions-
zone und mit in der Reaktionszone verlaufenden Rohren zur
Führung eines Heiz- oder Kühlfluids, die in einer Vorzugs-
richtung verlaufen, sowie mit Einrichtungen zur Zuführung
eines reagierenden und zur Abführung eines reagierten Flui-
20 des, der dadurch gekennzeichnet ist, daß die Einrichtungen
zur Zuführung und die Einrichtungen zur Abführung in Ebenen
senkrecht zur Vorzugsrichtung der Rohre angeordnet sind.

Gemäß einer bevorzugten Ausgestaltung des erfindungsgemäßen
25 Reaktors ist eine erste Einrichtung zur Zu- und Abführung
durch einen Strömungsraum am Umfang der Reaktionszone ge-
bildet, der durch einen mit Durchlaßöffnungen versehenen
Mantel von der Reaktionszone abgetrennt ist. Der Mantel
ist zweckmäßigerweise mit Abstand zu dem Gehäuse des Reak-
30 tors angeordnet und bildet mit diesem einen Strömungsraum
von ringförmigem Querschnitt.

Bei einer weiteren vorteilhaften Ausgestaltung ist eine
zweite Zu- oder Abführung durch einen Strömungsraum im
35 Inneren der Reaktionszone gebildet, der durch ein mit

- 1 Durchlaßöffnungen versehenes Zentralrohr von der umgeben-
den Reaktionszone abgetrennt ist.

Es erweist sich als günstig, wenn das Zentralrohr zugleich
5 als Wickelkern für die Heiz- oder Kühlrohre ausgebildet
ist.

In vorteilhafter Weiterbildung des Erfindungsgegenstandes
wird vorgeschlagen, daß in der Reaktionszone mindestens
10 eine senkrecht zur Achsrichtung verlaufende Trennwand an-
geordnet ist.

Es erweist sich weiterhin als zweckmäßig, wenn die Heiz-
oder Kühlflächendichte in der Reaktionszone variiert.

- 15 Die lokale Temperatur kann mittels dieser Maßnahme besser
auf den vom Verfahrensablauf her günstigsten Wert einge-
stellt werden.

Eine unterschiedliche Kühlflächendichte läßt sich beispiels-
20 weise dadurch erreichen, daß Rohre mit unterschiedlichen
Durchmessern und/oder unterschiedlichen gegenseitigem Ab-
stand und/oder unterschiedlichen Kühlrippen oder Kühlflossen
verwendet werden.

- 25 Bei einer bevorzugten Ausgestaltung des erfindungsgemäßen
Reaktors enthält die Reaktionszone eine Katalysatorschüt-
tung.

Der erfindungsgemäße Reaktor eignet sich vorzugsweise für
30 Reaktionen mit rascher Produktbildung, die mit einer relativ
kurzen durchströmten Reaktionszone auskommen, und die zum
Erreichen großer Produktmengen große Strömungsquerschnitte
benötigen. Ein Beispiel für eine derartige Reaktion ist
die Synthese von SO_3 aus SO_2 .

35

1 Weitere Anwendungsbeispiele für den erfindungsgemäßen Reaktor sind Methanolsynthese, Ammoniaksynthese, Formaldehyderzeugung, Benzingewinnung aus Methanol, Methanisierung und CO-Shift.

5

Die Erfindung sowie weitere Einzelheiten der Erfindung werden anhand von schematisch dargestellten Ausführungsbeispielen näher erläutert.

10 Hierbei zeigen:

Figur 1 einen erfindungsgemäßen Reaktor im Längsschnitt

Figur 2 eine weitere Ausgestaltung eines erfindungsgemäßen Reaktors im Längsschnitt

15 Figur 3 einen Ausschnitt aus einem erfindungsgemäßen Reaktor mit einem zugeordneten Temperaturprofil.

Der in Figur 1 dargestellte Reaktor weist ein Gehäuse 1 auf, in welchem eine Katalysatorschüttung angeordnet ist. Das

20 Gehäuse 1 enthält eine Einfüllöffnung 3 und eine Entleerungsöffnung 4 für die Katalysatorschüttung 2. Oberhalb und unterhalb der Katalysatorschüttung 2 ist Inertmaterial 5 eingefüllt, um Bypässe zu vermeiden und um teures Katalysatormaterial einzusparen.

25

Die Katalysatorschüttung ist an ihrem äußeren Umfang durch einen mit Durchlaßöffnungen versehenen Mantel 6 begrenzt, beispielsweise aus Lochblech und einem Maschensieb. Der Mantel 6 ist mit Abstand zu dem Gehäuse 1 angeordnet und
30 bildet mit diesem zusammen einen Raum 7 mit ringförmigem Querschnitt. In den Raum 7 münden Stutzen 8 zur Zuführung eines reagierenden Fluides. Im Inneren der Katalysatorschüttung 2 ist ein Zentralrohr 9 angeordnet, das im Bereich der Katalysatorschüttung 2 mit Perforationen versehen ist. Das Zentralrohr 9 ist an seiner Oberseite ge-
35

1 schlossen, während es nach unten durch das Gehäuse 1 nach
außen geführt und als Abführungsöffnung für reagierendes
Fluid ausgebildet ist.

5 Innerhalb der Katalysatorschüttung 2 sind Rohre 10 ange-
ordnet, die an ihren Enden in Rohrsammlern 11, 12 zusammen-
gefaßt sind. Die Rohre 10 verlaufen in der dargestellten
Ausführungsform geradlinig, ebensogut könnten die Rohre
auch um das Zentralrohr 9 gewickelt sein. Die Rohre 10
10 dienen zur Führung eines Heiz- oder Kühlfluids, je nachdem,
ob in dem Reaktor eine endo- oder eine exotherme Reaktion
stattfinden soll. In jedem Fall verläuft die Vorzugsströ-
mungsrichtung des in den Rohren 10 geführten Fluids in
axialer Richtung.

15 Wird in dem erfindungsgemäßen Reaktor eine exotherme Syn-
thesereaktion, z.B. eine Methanol- oder NH_3 -Synthese, durch-
geführt, so wird das reagierende Fluid, das sich auf einer
tieferen Temperatur als das Reaktionsprodukt befindet, über
20 die Stutzen 8 zugeführt. Das Fluid verteilt sich zunächst
gleichmäßig in dem Raum 7 und durchströmt anschließend die
Katalysatorschüttung 2 in radialer Richtung von außen nach
innen, wie dies durch Pfeile 13 angedeutet ist. Die bei
der katalytischen Synthese freiwerdende Wärme wird von in
25 den Rohren 10 geführtem Kühlfluid, z.B. verdampfendem
Wasser, aufgenommen und abgeführt. Der Verlauf des Kühlfluids
ist durch Pfeile 14 angedeutet. Nach Durchströmen der Reak-
tionszone gelangt das reagierte Fluid ins Innere des Zen-
tralrohres 9 und verläßt den Reaktor durch dieses nach
30 unten.

Diese Verfahrensführung bei einer exothermen Reaktion
bietet den Vorteil, daß das Gehäuse 1 durch das reagieren-
de Fluid, das sich auf einer relativ niedrigen Temperatur
35 befindet, gekühlt wird. Wird dagegen in dem Reaktor eine

1 endotherme Reaktion durchgeführt, bei der sich das rea-
gierte Fluid auf einer niedrigeren Temperatur als das rea-
gierende Fluid befindet, so wird vorzugsweise die Strömungs-
richtung des reagierenden Fluids umgekehrt, d.h. das rea-
5 gierende Fluid wird über das Zentralrohr 9 zugeführt und
durchströmt die Katalysatorschüttung 2 von innen nach außen,
um anschließend den Reaktor über die Stutzen 8 zu verlassen.

Gundsätzlich ist es auch möglich, den Reaktor auf dem
10 Kopf stehend zu betreiben, d.h. die Stutzen 8 im unteren
Bereich anzuordnen und das Zentralrohr 9 nach oben aus dem
Reaktor zu führen.

Figur 2 zeigt in schematischer Darstellung einen erfin-
15 dungsgemäßen Reaktor ähnlich denjenigen gemäß Figur 1,
jedoch mit dem Unterschied, daß die Katalysatorschüttung
2 durch Trennwände 15, 16 in drei axial voneinander getrenn-
te Abschnitte 17, 18, 19 unterteilt ist, die Reaktionsteil-
zonen bilden. Die obere Trennwand 15 reicht außen bis zur
20 Gehäusewand, während sie innen am Zentralrohr 9 endet. Die
untere Trennwand 16 endet außen am Mantel 6 und erstreckt
sich innen über den gesamten Querschnitt des Zentralrohres
9. Auf diese Weise wird das durch die Stutzen 8 zugeführte
Fluid entlang der Pfeile 20 auf einem zickzackförmigen
25 Strömungsweg nacheinander durch die drei Abschnitte 17, 18,
19 der Katalysatorschüttung 2 geführt. Die Reaktionszone
wird dadurch verlängert. Bei Bedarf werden in den einzelnen
Reaktionsteilzonen unterschiedliche Kühlflächendichten
eingestellt, beispielsweise durch Aufbringen von Kühlrippen
30 oder Kühlflossen an den Rohren 10. Es ist auch eine Anord-
nung denkbar, bei der sich die Trennwände nur über die
Querschnittsfläche der Katalysatorschüttung 2 erstrecken,
so daß die zwischen den Trennwänden liegenden Abschnitte
der Katalysatorschüttung parallel vom reagierenden Fluid
35 durchströmt werden.

- 1 Bei der in Figur 2 dargestellten Ausführungsform wird bei Bedarf dem Fluid 20 nach Durchströmen des ersten Abschnittes 17 und/oder des zweiten Abschnittes 18 kaltes unreakt-
- 5 reches Gas zugemischt, um eine zusätzliche Abkühlung zu erreichen und um den Katalysator besser auszunützen. Die Zuführung erfolgt beispielsweise über in der Figur 2 nicht dargestellte Gaszuführungseinrichtungen in das Zentralrohr 9 oder in den Raum 7 unterhalb der Trennwand 15.
- 10 Figur 3 zeigt einen Ausschnitt aus der Katalysatorschüttung eines erfindungsgemäßen Reaktors, wobei sich hier die Dichte der Kühlrohre 10 in Strömungsrichtung des reagierenden Fluides ändert. Unter diesem Ausschnitt ist der Temperaturverlauf des reagierenden Fluides auf seinem Weg durch die
- 15 Katalysatorschüttung 2 dargestellt. Das reagierende Fluid tritt mit der Temperatur T_E in die Reaktionszone ein und erwärmt sich durch die einsetzende Reaktion stark. Die Reaktionswärme wird von dem Kühlfluid abgeführt, das eine Temperatur T_K besitzt. In dem Bereich, in dem die Maximaltemperatur T_M zu erwarten ist, sind die Rohrabstände verringert, um die Heizflächendichte zu erhöhen und um eine Über-
- 20 hitzung des Katalysators und/oder unerwünschte Begleitreaktionen zu verhindern. Die Austrittstemperatur beträgt T_A .

25

30

35

Nummer:

33 18 098

Int. Cl.³:

B 01 J 19/00

Anmeldetag:

18. Mai 1983

Offenlegungstag:

22. November 1984

15-

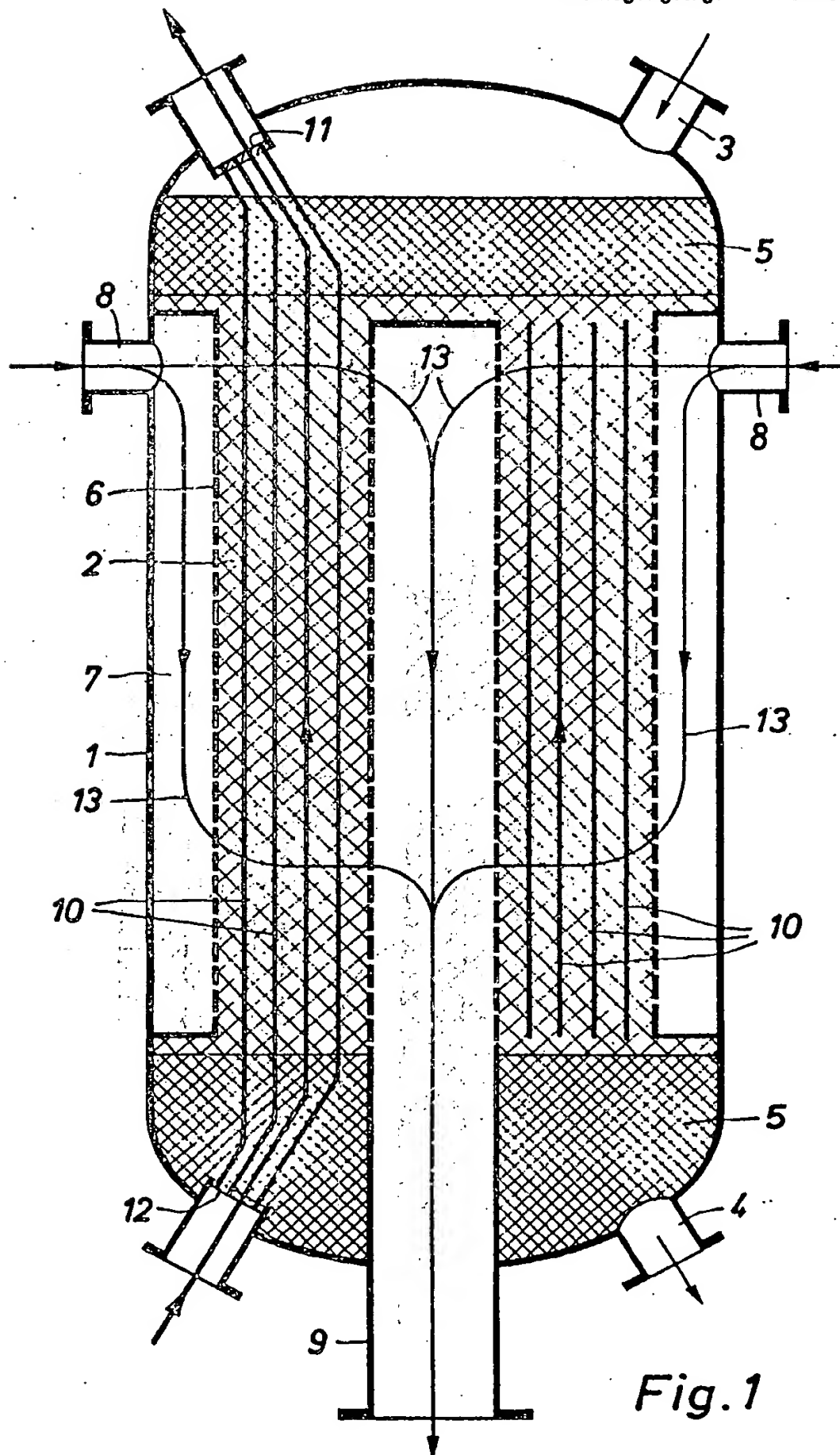


Fig. 1

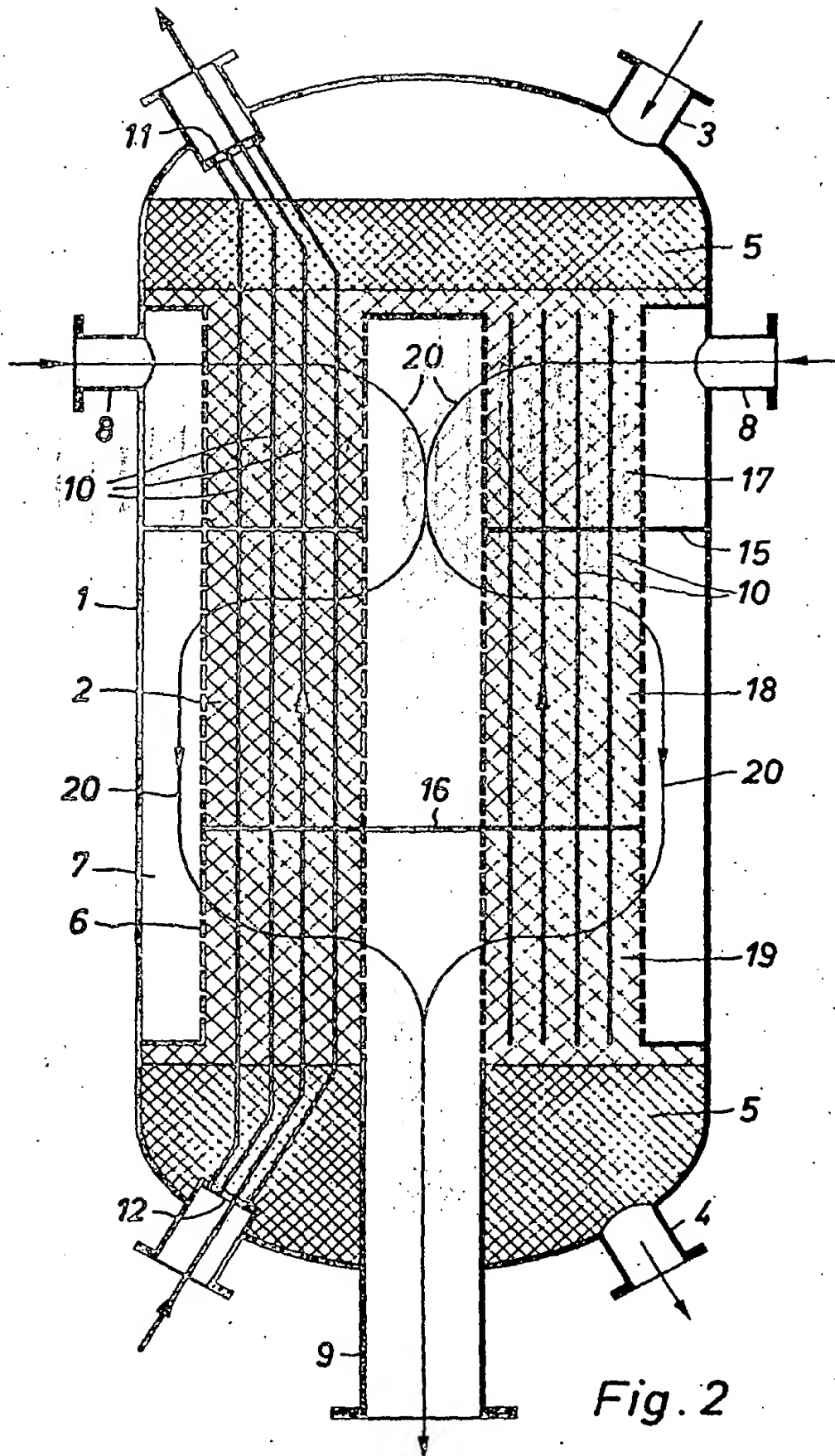
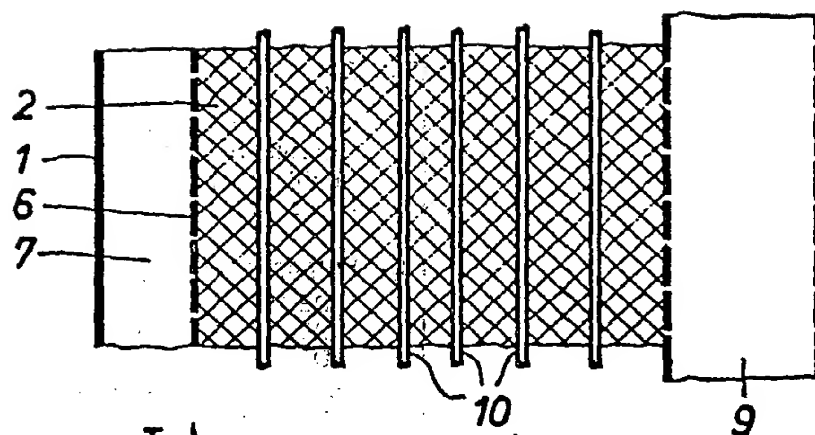


Fig. 2

*Fig. 3*